

明 細 書

生分解性ワックス組成物

技術分野

[0001] 本発明は、ワックスを主体とする組成物の製造方法、生分解性ワックス組成物及び生分解性積層体に関する。

背景技術

[0002] 防湿コーティング剤などのワックスを主体とする組成物を得る手段としては、従来は、主として組成物の成分を溶融状態で機械的に混合する方法(例えば、下記特許文献1参照)、ワックスエマルジョンを用いて混合する方法(例えば、下記特許文献2参照)が用いられてきた。

[0003] しかし前記の方法には以下の問題があった。溶融状態で機械的に混合する方法では、溶融状態のワックスの粘度が低いために、固体状または高粘度の物質との混合を行う場合に、これら被混合物へ十分な剪断力が加わらないために、各成分の均一な分散状態を得るのが困難であった。ワックスエマルジョンを用いる方法では、エマルジョンを構成する成分の粒子サイズ以下で該成分を分散させることが不可能であるため、均一な分散状態の組成物を得ることが困難であった。

[0004] 一方、ワックスは、防湿剤やホットメルト接着剤の一成分として広く使用されているが、近年の環境意識の高まりから、これらワックスを用いた素材にも生分解性が要求されるようになりつつある。ワックスの中には生分解性を有するものも種々あるが、ワックスを単独で使用した場合には、その溶融粘度が極端に低いため、通常は樹脂等を混合して使用されている。

熱可塑性樹脂と粘着付与剤とを主成分とする生分解性のホットメルト接着剤組成物が知られている(特許文献3参照)。この組成物においては、熱可塑性樹脂及び粘着付与剤の少なくとも一方がポリ乳酸又は乳酸共重合体からなり、50重量%以下のワックスを含む。また、生ロジン、天然ゴム及びワックスからなる生分解性のホットメルト接着剤組成物も知られている(特許文献1参照)。これらの組成物は、十分な防湿性を有するものではないので、この組成物を溶融成形して得られたフィルムを、例えば

BEST AVAILABLE COPY

防湿性が必要とされる包装材や容器のライナーとして用いることはできない。ホットメルト粘着剤として用いられるという性質上ワックス単体に比べるとその熔融粘度が高くなっているが、押出機を用いたTダイフィルムやインフレーションフィルムの製造などの熔融成形を行うほどの高い熔融粘度は有さない。

- [0005] 熔融成形可能な生分解性の組成物として、コーングルテンミール及び天然ゴムを主成分とするものが知られている(特許文献4参照)。この組成物は生分解性である上に耐水性や湿潤強度が高いとされている。しかし、特許文献1及び2に開示されたホットメルト接着剤組成物と同様に、十分な防湿性を有するものではない。

特許文献5には、溶媒を用いて混合した天然ゴムと天然ワックスからなる防湿性を有するコート用の塗液が開示されている。溶剤を用いる方法では、中間製品や最終製品において残留溶剤による臭いや安全性での問題のほか、多量の溶剤を使用するために自然環境、労働環境などに悪影響を及ぼす問題を有している。

- [0006] このように、熔融成形が可能で且つ防湿性が十分に高い生分解性の組成物、接着性が高く且つ防湿性が十分に高い生分解性の組成物は未だ得られていない。

- [0007] 特許文献1:特開平7-278510号公報

特許文献2:特開昭59-66598号公報

特許文献3:特開平5-339557号公報

特許文献4:特開2001-288295号公報

特許文献5:特開2002-266284号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

- [0008] 従って本発明は、前述した従来技術が有する種々の欠点のないワックス組成物の製造方法を提供することを第1の目的とする。

また、本発明は、防湿性に優れ、熔融成形が容易な生分解性ワックス組成物を提供することを第2の目的とする。

課題を解決するための手段

- [0009] 本発明は、ワックスを主体とし、生分解性の高分子物質およびフィラーを含有するワックス組成物の製造方法であって、予めワックス及び高分子物質を含み該ワックスを

主体とするワックス／高分子物質組成物を混練する工程と、このワックス／高分子物質組成物にフィラーを更に添加して混練する工程とを具備するワックス組成物の製造方法を提供することにより前記第1の目的を達成したものである。

[0010] また、本発明は、ワックスを主体とし、生分解性の高分子物質およびフィラーを含有し、40℃、90%RHにおける透湿度が $3\text{g}\cdot\text{mm}/\text{m}^2\cdot 24\text{hr}$ 以下である生分解性ワックス組成物を提供することにより、前記第2の目的を達成したものである。

[0011] また、本発明は、前記本発明の生分解性ワックス組成物からなる防湿層を有し、該防湿層の少なくとも一面に生分解性の基材層が積層されてなる生分解性積層体を提供するものである。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]DSC測定結果から融解完了温度、融解ピーク温度を求める説明図である。

発明の詳細な説明

[0013] 以下、本発明の生分解性ワックス組成物(以下、単にワックス組成物ともいう。)を、その好ましい実施形態に基づき説明する。

本発明のワックス組成物は、ワックスを主体とし、生分解性の高分子物質およびフィラーを含有する。

本発明のワックス組成物は、ワックスを主体として用いることで十分な防湿性が発現される。また生分解性を確保することができる。ここで、本明細書において、ワックスを主体(主成分)とするとは、ワックスが、含有される全成分の中で体積分率で最も多くを占めることを意味する。ワックスを主成分とすることで十分な防湿性を発現させることができる。より高い防湿性を得る上では、ワックスが好ましくは体積分率で40%超、より好ましくは50%超である。

[0014] 本発明のワックス組成物はその透湿度が、40℃、90%RHの環境下において $3\text{g}\cdot\text{mm}/\text{m}^2\cdot 24\text{hr}$ 以下であり、好ましくは $2\text{g}\cdot\text{mm}/\text{m}^2\cdot 24\text{hr}$ 以下、より好ましくは $1\text{g}\cdot\text{mm}/\text{m}^2\cdot 24\text{hr}$ 以下である。該透湿度の下限值に制限はなく低ければ低いほど好ましい。

[0015] 前記透湿度は、該ワックス組成物から所定厚みのフィルムを成形し、そのフィルムについてカップ法(JIS Z 0208 条件B)によって測定した透湿度を厚み1mmのフィ

ルムに換算した値である。この透湿度の換算値は、透湿度がフィルム厚みに反比例すると仮定し、カップ法で測定した透湿度にフィルム厚みを乗じることにより算出される。

ただし、ワックス組成物のみからなるフィルムを作成し、その透湿度を上記の方法で測定することが困難である場合が多いため、その場合には透湿度が既知の生分解性樹脂フィルムと、ワックス組成物との積層フィルムを作成し、ワックス組成物の透湿度を求める。例えば、生分解性樹脂層(A)/ワックス組成物層(B)/生分解性樹脂層(C)からなる3層フィルムを作成し、上記の方法で3層フィルム全体の透湿度を測定し、その透湿度をdとする。そして、別途、生分解性樹脂層(A)および生分解性樹脂層(C)の透湿度を同様に測定し、それぞれの透湿度をaおよびcとする。このとき、ワックス組成物層(B)の透湿度をbとすると、下記の関係が成り立つ。ここで、a、b、c、dは、実際の厚みにおける透湿度であり、1mmの厚みに換算した透湿度ではない。

$$1/d = 1/a + 1/b + 1/c$$

この式から、未知数であるワックス組成物層(B)の透湿度bを求めることができる。

[0016] ワックス組成物がワックスを主体とすることは前述の通りであるが、前記の透湿度を容易に達成するためには、ワックス組成物はワックスを65〜95重量%、特に70〜85重量%含有することが好ましい。また、ワックス組成物に後述するような比重の高い無機粉体等がフィラーとして添加されている場合には、ワックスの体積分率で60〜95%、より好ましくは70〜85%含有することが好ましい。

[0017] 本発明のワックス組成物の生分解性を確保する観点から、前記ワックスとしてその生分解度(JIS K6950又はJIS K6953)が30%以上であるものを用いることが好ましく、50%以上であるものを用いることが更に好ましく、60%以上のものを用いることが一層好ましい。ただし、後述のようにワックス組成物が無機フィラーを含有する場合には、生分解性度の測定においては、有機成分のみの生分解度を測定する。

[0018] また前記ワックスは、本発明のワックス組成物や該ワックス組成物から熔融成形した成形体の保存安定性の点から、その融点が40℃以上であることが好ましく、60℃以上であることが一層好ましい。ワックスの融点は、JIS K2235-5.3に従って測定される。

[0019] ワックスとしては例えば、植物系ワックス、動物系ワックス、鉱物系ワックス、石油系ワックス、合成ワックス等を用いることができる。これらのワックスは単独で又は二種以上を組み合わせて用いることができる(府瀬川健蔵、「ワックスの性質と応用」、幸書房、1993年、改訂2版第1刷、2頁目、表1. 0. 1に記載されたワックスが使用可能である)。植物系ワックスとしては、ライスワックス、カルナバワックス、木ろう、キャンドリラワックス等が挙げられる。動物系ワックスとしては、みつろう、ラノリン、鯨ろう等が挙げられる。石油系ワックスとしては、マイクロクリスタリンワックス、パラフィンワックス等が挙げられる。合成ワックスとしては、ポリエチレンワックス、フィッシュアトロブシュワックス等が挙げられる。鉱物ワックスとしては、モンタンワックス、オゾケライト、セレシン等が挙げられる。これらのワックスはいずれも好ましく使用することができるが、十分な冷却能力を持つ混合機を使用できない場合には、混練時の剪断発熱による温度上昇でワックス中の低融点成分が融解してワックスの粘度が低下し、被混合物(ワックスと混合される物質をいう)に十分な剪断力が加わらなくなるおそれがあるので、低融点成分が少ないワックスを用いることが好ましい。同様の理由で、非晶成分が少ないワックスを用いることが好ましい。ただし、ワックス組成物の用途によっては、生活温度範囲である程度の粘着性を必要とする場合があるので、混合に大きな影響を与えない範囲で、適度な量の低融点成分や非晶成分を含有することが好ましい場合もある。かかる観点から、JISK2235-5. 3. 2に記載の方法で測定された融点が40℃以上であるものが好ましく、60℃以上であるものがより好ましい。

[0020] 本発明で使用する前記フィラーとは、無機物または有機物、及びその複合体からなる粒子状の物質をさす。フィラーの添加量は、生分解性のない無機フィラーの場合には、30重量%未満とすることが、ワックス組成物の生分解性の効果を確保する上で好ましい。粘度を向上させることによって本発明のワックス組成物の熔融流動特性を熔融成形に適したものとするためには、無機フィラーの添加量は好ましくは1重量%以上、より好ましくは2重量%以上、さらに好ましくは3重量%以上である。なお、フィラー添加による生分解性フィルム等との接着性低下を考慮すると、該添加量は、30重量%以下が好ましく、より好ましくは25重量%以下、さらに好ましくは10重量%以下である。

- [0021] 前記無機フィラーとしては、例えば無水シリカ、雲母、タルク、酸化チタン、炭酸カルシウム、ケイ藻土、アロフェン、ベントナイト、チタン酸カリウム、ゼオライト、セピオライト、スメクタイト、カオリン、カーボン等が挙げられる。これらの無機フィラーは生分解性とは言えないが、無機フィラーの多くは元来自然界に存在するものであるから、生分解性でなくても環境負荷になるものではない。天然の無機フィラーを用いることが好ましいが、合成された無機フィラーを用いる場合であっても、その使用量はワックス組成物に対して前述した範囲の程度であるから、該無機フィラーを含むワックス組成物は、特に制約なく廃棄可能な物として法律又は条例で定められている部類に属するものであり特に問題はない。
- [0022] 前記有機フィラーは、生分解性を有することが必要であり、生分解性を有する脂肪族ポリエステル系樹脂、脂肪族ポリエステルと芳香族ポリエステルとの共重合系樹脂、又は脂肪族ポリカーボネート系樹脂から構成されていることが好ましい。具体的には、ポリエチレンサクシネート(PES)、ポリブチレンサクシネート(PBS)、ポリ乳酸(PLA)、ポリグリコール酸(PGA)、ポリヒドロキシブチレート(PHB)、ポリカプロラクトン(PCL)、ポリカプロラクトンとポリブチレンサクシネートとの混合物若しくは共重合物(PCL/PBS)、ポリヒドロキシブチレートとポリヒドロキシバリレートとの共重合物(PHB/PHV)、ポリブチレンサクシネートとポリブチレンアジペートとの混合物若しくは共重合物(PBS/PBA)、ポリエチレンテレフタレートとポリエチレンサクシネートとの共重合物(PET/PES)、ポリブチレンテレフタレートとポリブチレンアジペートとの共重合物(PBT/PBA)等が挙げられる。また、生澱粉または加工澱粉、パルプ、キチン・キトサン質、椰子殻、木材粉末、竹粉末、樹皮粉末、またはケナフや藁などの粉末といった、天然物由来の有機粉体も使用できる。
- [0023] 前記フィラーはその平均粒径が5nm〜50 μ m、特に10nm〜10 μ m程度のものを用いることが、前記ワックス、後述するポリイソプレンや天然ゴム等の高分子物質との均一な混練性、粘度向上の効果の点から好ましい。フィラーは、例えば前記ワックスと高分子物質とを混練してワックス組成物を製造するときに、混練機に供給すればよい。
- [0024] 本発明の生分解性ワックス組成物は、125℃、1.2kgf荷重下でのメルトフローレー

ト(以下MFRともいう)が0.1〜1000g/10minであることが好ましく、より好ましくは0.5〜100g/10min、さらに好ましくは1〜30g/10minである。つまり本発明の生分解性ワックス組成物は、押出機を用いた溶融成形に適した溶融流動特性を有している。従って本発明の生分解性ワックス組成物を用いれば、Tダイ法やインフレーション法によるフィルム成形を容易に行うことができる。

[0025] 前記高分子物質は、ワックスの固体状態もしくは溶融状態の物性改質や機能付加等を目的として用いられる。例えば、固体状態の力学強度(破断強度、衝撃強度、曲げ強度、柔軟性付与等)、他の材料への接着性向上や、溶融状態での溶融粘度向上等である。

[0026] 前記高分子物質としては、未架橋のゴムや前述の生分解性を有する脂肪族ポリエステル系樹脂、脂肪族ポリエステルと芳香族ポリエステルとの共重合系樹脂、又は脂肪族ポリカーボネート系樹脂などの非晶性高分子若しくは結晶性高分子等が挙げられる。ただし、混合する高分子物質を微細に分散させるためには、結晶性高分子の場合にはワックスの融解終了温度以下である所望の混合温度において溶融するものが好ましく、非晶性高分子の場合にはワックスの融解終了温度以下である所望の混合温度以下にガラス転移温度を有するものが好ましい。これらの中でも、非晶性で、ワックスの融点以上においてワックスと相溶性を有するものが好ましく、特にポリイソブレン又は天然ゴムが好ましい。

[0027] 本発明のワックス組成物は、後述するように前記高分子物質を配合することでの溶融粘度が高められるが、その場合の高分子物質はワックス組成物の防湿性を低下させる傾向がある。本発明者らが鋭意検討したところ、前記高分子物質としてポリイソブレン又は天然ゴムを組成物中に配合すると、得られるワックス組成物の防湿性を低下させることなく、溶融粘度を高められることが判明した。また、前記高分子物質と前記ワックスとを組み合わせることで生分解性が得られる。更に、ポリイソブレン又は天然ゴムを配合することで、ワックス組成物を成形して得られる成形物に耐熱性や強度を付与できるという付加的効果もある。

[0028] 本発明の生分解性ワックス組成物中へのポリイソブレンや天然ゴム等の高分子物質の配合量が多すぎると溶融粘度が高くなりすぎて溶融成形等の加工性が低下する

場合がある。また防湿性も低下する傾向にある。逆にポリイソプレンや天然ゴム等の高分子物質の配合量が少なすぎると、ワックス組成物の熔融粘度を十分に高めにくい場合がある。これらを勘案すると、ワックス組成物の防湿性を低下させることなく、熔融成形に適した熔融流動特性等を得るためには、ワックス組成物中へのポリイソプレンや天然ゴム等の高分子物質の配合量は5〜35重量%、特に15〜30重量%であることが好ましい。

[0029] 本発明の生分解性ワックス組成物の熔融流動特性を熔融成形に適したものとするには、ポリイソプレンや天然ゴムの分子量を適切にコントロールすることが有利であることが本発明者らの検討によって判明した。例えばポリイソプレンについては、その重量平均分子量を200,000以上、特に400,000以上、より好ましくは700,000以上の範囲にコントロールすると、得られるワックス組成物の熔融流動特性を熔融成形に適したものとすることができる。重量平均分子量の上限は、熔融粘度を高める点で特に制約はないが、ワックス組成物の製造のしやすさを考慮すると4,000,000以下、特に2,000,000以下が好ましい。重量平均分子量は、例えば、ワックス組成物をクロロホルムに溶解させた後、未融解のワックスを濾過により除去した溶液でGPCを測定し、その結果と分子量既知のポリスチレン標準サンプルのGPC測定で得た校正曲線とから重量平均分子量を求めることができる。

[0030] また、ポリイソプレンや天然ゴムの分子量をコントロールする方法には、例えば本発明のワックス組成物の製造過程において、ワックスとポリイソプレン又は天然ゴムとを混練してワックス組成物を製造するときの混練時間、剪断力、温度を調整し、ポリイソプレンや天然ゴムに機械的な剪断力を加えて分子鎖を切断したり、混練時に発生する熱によって酸化反応を生じさせて分子鎖を切断する方法もある。一般に、混練時間が長くなるとポリイソプレンや天然ゴムの分子量が低下していき、ワックス組成物のMFRは上昇する傾向にあるため、熔融粘度を高く維持するためには、分子量低下を極力防止して均一に混合することが好ましい。

[0031] 本発明のワックス組成物は、ペレット形状に加工することで、一般的な押出機に供給して熔融成形を行うことができる。ただし、前記ワックスの種類や前記生分解性の高分子物質等の種類や組成比によって、ペレットはブロッキングしやすくなるため、表

面にブロッキング防止用の粉体を付着させた状態で製品とすることが好ましい。ペレット形状に加工する方法としては、樹脂ペレットを製造するための一般的な方法を用いることができる。ブロッキング防止用の粉体としては、前述した無機フィラーを用いることができ、その量はワックス組成物100重量部に対して0.5〜5重量部、さらには1〜3重量部とすることが好ましい。そうすることで、ブロッキング防止効果と熔融流動特性向上効果の両方を得ることが可能となる。

[0032] 本発明のワックス組成物は、例えばこれを加熱して熔融させた状態下に生分解性の容器の表面にコートすることができる。

[0033] 次に、本発明の生分解性積層体を好ましい実施形態に基づき説明する。

本実施形態の生分解性積層体は、前記本発明のワックス組成物からなる防湿層の少なくとも一面に生分解性基材層が積層されてなるものである。

本実施形態の生分解性積層体は、前記本発明のワックス組成物をTダイ法やインフレーション法で熔融成形して防湿層を得、この防湿層の少なくとも一面に生分解性樹脂層(生分解性基材層)を積層し、防湿性を有する多層の生分解性フィルムの形態とすることができ、前記生分解性フィルムは、その好ましい実施形態においては、前記防湿層の各面に生分解性樹脂層が積層されてなる3層構造となっている。

[0034] 前記生分解性フィルムは、前記防湿層の存在によって防湿性を有している。生分解性フィルムの防湿性の程度は、カップ法(JIS Z 0208 条件B)により測定した透湿度を厚み1mmのフィルムに換算した値が $2\text{g}\cdot\text{mm}/\text{m}^2\cdot 24\text{hr}$ 以下であることが好ましく、 $1\text{g}\cdot\text{mm}/\text{m}^2\cdot 24\text{hr}$ 以下であることがより好ましい。この透湿度の値は、ワックス組成物の透湿度に関して先に述べた算出法と同様にして算出される。

ただし、ワックス組成物のみからなるフィルムを作製し、その透湿度を上記の方法で測定することが困難である場合が多いため、その場合には透湿度が既知の生分解性樹脂フィルムと、ワックス組成物との積層フィルムを作製し、ワックス組成物の透湿度を求める。例えば、生分解性樹脂層(A)/ワックス組成物層(B)/生分解性樹脂層(C)からなる3層フィルムを作製する。そして、上記の方法で3層フィルム全体の透湿度を測定し、その透湿度をdとするとともに、別途、生分解性樹脂層(A)および生分解性樹脂層(C)の透湿度を同様に測定し、それぞれの透湿度をaおよびcとする。ワ

ックス組成物層(B)の透湿度をbとすると、下記の関係が成り立つ。ここで、a、b、c、dは、実際の厚みにおける透湿度であり、1mmの厚みに換算した透湿度ではない。

$$1/d = 1/a + 1/b + 1/c$$

この式から、未知数であるワックス組成物層(B)の透湿度bを求めることができる。

[0035] 前記生分解性フィルムは、これを生分解性の容器本体の表面に被覆することを考慮すると、熱成形性を有していることが好ましい。熱成形性とは、生分解性フィルムを所定温度に加熱した後、該フィルムの両端を把持し一軸方向に沿って互いに逆方向に引っ張って2倍の長さに引き伸ばしたときに、該生分解性フィルムが破断しないことをいう。生分解性フィルムを熱成形する場合の加熱温度は、使用する生分解性樹脂、防湿層に使用するワックス、熱成形の方法(真空/圧空成形、プレス成形等)により適宜選択する。この加熱温度は、生分解性フィルム全体が適切な厚み分布で成形され、且つ十分な防湿性が得られるよう選択する。フィルムの厚みのムラを抑えることができる加熱温度で熱成形することが、十分な防湿性を得る上で重要である。その条件を満足する加熱温度は、当業者が一般的に行う最適条件化の手法により求めることができる。

[0036] 熱成形性の有無の判断においても、実際の成形と同様に良好な結果を得ることができる加熱温度を選択する。加熱温度の目安としては、例えば、以下の温度範囲で条件を選択することで良好な結果が得られる場合が多い。生分解性樹脂が結晶性樹脂の場合は、DSC測定により得た融解曲線から求めた溶融ピーク温度 $T_m(^{\circ}\text{C})$ に対し、 $(T_m - 40^{\circ}\text{C}) \sim (T_m + 20^{\circ}\text{C})$ の範囲である。ただし、溶融ピーク温度が複数存在する場合には、融解熱量が最も大きな溶融ピークを選択する。生分解性樹脂が非結晶性樹脂の場合は、そのガラス転移温度 T_g に対して $T_g \sim T_g + 50^{\circ}\text{C}$ の範囲である。

[0037] 前記生分解性フィルムは、現実的な期間での分解を考慮すると、例えば、コンポスト等では2・3ヶ月の期間で分解できる点から、その生分解度(好氣的究極生分解度: JIS K 6950又はJIS K 6953)が30%以上であることが好ましく、50%以上であることがより好ましく、60%以上であることがさらに好ましい。

[0038] 前記生分解性フィルムは、防湿層を構成するワックス組成物と、生分解性樹脂層を構成する生分解性樹脂とを原料とし、例えばマルチマニホールドのTダイを用いた溶

融共押出成形することで得られる。ワックス組成物は先に述べた通り溶融成形に適した流動特性を有しているため、この共押出成形は首尾良く行うことができる。得られたフィルムは必要に応じて一軸又は二軸延伸される。

[0039] 前記生分解性フィルムは、フィルム強度及びフィルムの成形性の点からその全厚みが10〜2000 μm であることが好ましく、20〜1000 μm であることがより好ましい。生分解性フィルムにおける生分解性樹脂層の厚みはその使用目的等に応じて適宜選択することができる。フィルム強度とフィルムの取扱い性の点からは5〜1000 μm であることが好ましく、10〜500 μm であることがより好ましい。一方、防湿層の厚みは、実用的な防湿性を与えるとともに高温での生分解性フィルムの強度を維持する点から1〜500 μm であることが好ましく、10〜100 μm であることがより好ましい。

[0040] 前記生分解性フィルムにおける前記生分解性樹脂層は、生分解性を有する脂肪族ポリエステル系樹脂、脂肪族ポリエステルと芳香族ポリエステルとの共重合系樹脂、又は脂肪族ポリカーボネート系樹脂から構成されていることが好ましい。具体的には、ポリエチレンサクシネート(PES)、ポリブチレンサクシネート(PBS)、ポリ乳酸(PLA)、ポリグリコール酸(PGA)、ポリヒドロキシブチレート(PHB)、ポリカプロラクトン(PCL)、ポリカプロラクトンとポリブチレンサクシネートとの混合物若しくは共重合物(PCL/PBS)、ポリヒドロキシブチレートとポリヒドロキシバリレートとの共重合物(PHB/PHV)、ポリブチレンサクシネートとポリブチレンアジペートとの混合物若しくは共重合物(PBS/PBA)、ポリエチレンテレフタレートとポリエチレンサクシネートとの共重合物(PET/PES)、ポリブチレンテレフタレートとポリブチレンアジペートとの共重合物(PBT/PBA)等が挙げられる。これらの樹脂は、単独で又は二以上を組み合わせで用いることができる。

[0041] 前記生分解性樹脂層は、実用的な期間で分解する点から、生分解度(好氣的究極生分解度:JIS K 6950又はJIS K6953)が、30%以上であることが好ましく、50%以上であることがより好ましく、60%以上であることがさらに好ましい。

[0042] 前記生分解性フィルムを生分解性の容器本体の表面に被覆することで、生分解性容器となすことができる。前記生分解性フィルムが防湿層と生分解性樹脂層の2層構造である場合、該生分解性フィルムは生分解性樹脂層が容器本体と反対側を向くよ

うに被覆される。前記容器本体は、生分解性を有するものであればその素材に特に制限はない。容器本体の生分解度(好氣的究極生分解度:JIS K6950又はJIS K6953)は、30%以上であることが好ましく、50%以上であることがより好ましく、60%以上であることが更に好ましい。前記容器本体の素材としては、例えば、天然繊維、生分解性の合成繊維等の繊維、天然高分子、前記生分解性樹脂、及びこれらの混合物等が挙げられる。天然繊維としては、木材パルプ繊維、非木材パルプ繊維、絹、羊毛等が挙げられる。生分解性の合成繊維としては、ポリ乳酸繊維、ビニロン、レーヨン等が挙げられる。天然高分子としては、でん粉、たん白質等が挙げられる。容器本体はその形態に特に制限はない。例えば、カップ、どんぶり、ボトル、皿、鉢、箱、筒等の各種の容器形態が挙げられる。

[0043] 前記容器本体の部位のうち生分解性フィルムで被覆する部位は、容器の用途、形態等に応じて適宜選択することができる。例えば、容器本体の内面、容器本体の外表面等が挙げられる。特にカップ等を用いる場合には、少なくとも容器本体の内表面が生分解性フィルムで被覆されていることが好ましい。

[0044] 前記容器本体の表面に生分解性フィルムを被覆する場合は、容器本体の表面と生分解性フィルムとの間に接着剤を介して接合することもできるし、容器本体の表面と生分解性フィルムとを直接接合することもできる。接着剤を用いる場合、該接着剤は、生分解性を有するものであればその組成に特に制限はない。接着剤は生分解性フィルムと同様に生分解度(好氣的究極生分解度:JIS K6950又はJIS K6953)が30%以上であるものが好ましく、50%以上であるものがより好ましく、60%以上であるものがさらに好ましい。具体的にはデンプン、ポリビニルアルコール、にかわ、ゼラチン、カゼイン、未加硫の天然ゴム、未加硫のポリイソプレン等が挙げられる。また、接着剤として、加熱溶融により容器本体に接着させるために容器本体側の生分解性樹脂層よりも融点の低い生分解性樹脂や各種天然樹脂等を用いることもできる。溶媒の揮散により接着させる接着剤を用いる場合には、接着成分を含む溶液を生分解性フィルムと容器本体との何れか一方若しくは両方に塗布することもでき、接着成分を生分解性フィルム若しくは容器本体の何れか一方の表面に形成し溶媒を他の一方に塗布することにより接着させることもできる。容器本体の表面と生分解性フィルムと

を直接接合する方法としては、例えば、生分解性フィルムを容器本体の内面に配した後、容器本体をその外面側から加熱した状態で真空成形又は圧空成形を行う方法が挙げられる。

[0045] 前記生分解性フィルムの用途は広く、先に述べた通り生分解性容器における容器本体表面の被覆に用いられるほか、各種包装材フィルムや板紙(生分解性の紙)と生分解性フィルムとをラミネートしたラミネート紙等の生分解性防湿紙、該生分解性防湿紙からカップや箱等の形態に折曲加工や成形した生分解性容器にも用いることができる。

[0046] 本発明のワックス組成物は種々の方法で調製できる。本発明のワックス組成物は、一例としてワックスとポリイソプレン又は天然ゴム等の高分子物質とを加圧ニーダー等の混練機に供給し高剪断力で混練することで製造することができる。特に後述する本発明のワックス組成物の製造方法は、本発明のワックス組成物の製造に好適である。

また、これ以外に別の例として、ポリイソプレン又は天然ゴム等の高分子物質をn-ヘプタン等の溶剤に溶解させ、更に前記ワックスを該溶媒に溶解させた後、該溶剤を揮発等の手段によって除去することで製造することができる。

これらの製造方法のうち、溶剤の残留がない、溶剤を使用しないので環境負荷が小さい、製造コストが低い点から前者の方法を用いることが好ましい。また、ポリイソプレン又は天然ゴムの場合は加熱すると酸化により著しく分子量が低下するので加熱する際には、その時間を極力短くし、窒素雰囲気下で行うことが好ましい。特に、溶剤を用いて組成物を調製する場合には、溶剤を揮散させる時に分子量が低下し、融粘度の著しい低下が生じやすいので注意が必要である。

[0047] 次に、本発明のワックス組成物の製造方法を、その好ましい実施形態に基づき説明する。

[0048] 前記ワックスは、混練機に供給するに先立って、粉碎機、押出機、融解させた後に液滴を冷却するなどの方法によって適切な大きさのペレットまたは粉体状(例えば平均直径2〜10mm又は、微粉1mm以下)にすることが好ましい。

[0049] 本発明のワックス組成物には、混練に支障ない範囲で、酸化防止剤、着色剤、分散助剤、その他必要に応じて適宜添加剤等を含ませることもできる。

- [0050] 本発明で使用される混練機としては、それ自体公知の装置であり、たとえば容器内で互いに異方向に回転可能な二枚の混練羽根を有する加圧ニーダー等が挙げられる。
- [0051] 次に、以上の各成分を含むワックス組成物の製造方法について説明する。本発明のワックス組成物の製造方法では、前記ワックスと前記被混合物とを該ワックスの融解完了温度未満の温度、好ましくはDSC測定により得た融解曲線から求めたワックスの溶融ピーク温度以下の温度で混練機によって混合して組成物を得るのが好ましい。溶融ピークが複数ある場合は、融解熱量の最も大きなピークのピーク温度以下で混合することが好ましい。かかる条件で混合することで、ワックスの融解によるワックスの急激な粘度が低下もなく、被混合物に十分な剪断力が加わり、均一なワックス組成物を得ることができる。ワックスの融解完了温度未満の温度で混合すると、未溶融状態のワックスの結晶が残っているため、ワックスを見かけ上高粘度の流動体として扱うことができるので、一般的に行われているプラスチック材料のコンパウンドと同様の方法により、ワックスと被混合物の混合を行うことができる。
- [0052] より好ましい混合温度の選定方法を述べる。すなわち、DSC測定により得たワックスの融解曲線から、融解ワックス成分の全吸熱量を ΔH と、混合温度よりも低温側の吸熱量の $\Delta H'$ の比 $\Delta H' / \Delta H$ が、好ましくは0.7以下となる温度範囲、より好ましくは0.5以下となる温度範囲、さらに好ましくは0.3以下となる温度範囲を選定することで、一層良好な混合が可能となる。ワックスの融解開始温度よりも低い温度で混合を行うことに支障は無いが、結晶性の高い硬いワックスなどの場合には、混合温度で粘性を有することが均一な混合物を得る上で好ましい場合があり、その場合には $\Delta H' / \Delta H$ の下限の温度として、好ましくは0.03以上、より好ましくは0.05以上となるよう選択する。同様の考え方として、ワックスの融解開始温度近傍もしくはそれよりも低い温度で混合する場合に、ワックスの可塑化効果を有するオイル成分などを適量(ワックス組成物中に好ましくは20重量%以下、より好ましくは10重量%以下となるように)を添加することも可能である。
- [0053] 最適な混合温度は、被混合物の物性に合わせて、前記の混合温度の中から適宜選択することができる。例えば、被混合物が非晶性高分子である場合は、高分子物

質のガラス転移温度以上で混合することが好ましい。被混合物が結晶性高分子物質である場合は、高分子物質の融点以上の温度であることが好ましい。被混合物が無機又は有機の粉体である場合は、粉体の均一分散を行いやすいよう、ワックスの融解完了温度よりも十分に低い温度(例えば、ワックスの融解開始温度よりも低い温度)で混合することが好ましい。ただし、ワックスのガラス転移温度よりも低い温度での混合は、ワックスが硬過ぎて、分散状態が悪化したり、混合装置に過度の負荷がかかるなどの悪影響がでる場合があるので、ワックスのガラス転移温度以上で混合することが好ましい。また、ワックスや被混合物の温度依存性を考慮し、前記の好ましい範囲の中でも、両者の物性が混合に最適な状態になるように混合温度を調整することが好ましい。

[0054] 本発明におけるワックスの融解完了温度、融解ピーク温度、 ΔH と $\Delta H'$ の比 $\Delta H'/\Delta H$ は、例えば、以下の方法で求めることができる。

測定機:セイコー電子工業(株)の型式DSC220

試料容器:品番PN/50-020(アルミ製オープン型試料容器、容量15 μ l)および品番PN/50-021(アルミ製オープン型試料容器クリンプ用カバー)

試料重量:約10mg

昇温速度、降温速度:5°C/min

測定温度範囲:用いるワックスに応じて、最適な範囲を選択する。融解完了温度および融解ピーク温度は、一度融解させた後に5°C/minの速度で結晶化させた後、再度5°C/minの速度で昇温させたときのデータを使用して求める。

具体例を挙げると、[1st昇温過程]-30°Cから130°C、[降温過程]130°C(5分間保持)から-30°C、[2nd昇温過程]-30°Cから130°Cと連続して測定を行い、2nd昇温過程のデータを使用する。

融解完了温度:図1に示すように、融解ピークの高温側のベースラインの接線と、ピークの高温側傾斜ラインの1/5ピーク高さに位置する点の接線とが交差する点の温度を融解完了温度とする。複数のピークが存在する場合は、最も高温側に位置するピークを選択して、融解完了温度を求める。

主ピーク温度:融解曲線のピークの温度を前記データから求める。複数のピークを

持つ場合は、融解熱量の最も大きなピークを選択し、それを融解ピーク温度とする。

ΔH : 全ての溶融ピークの吸熱量の合計値

$\Delta H'$: 混合温度以下の吸熱量

- [0055] 本発明のワックス組成物の製造方法は、ワックス及び高分子物質を含み該ワックスを主体とするワックス／高分子物質組成物を混練する工程と、このワックス／高分子物質組成物にフィラーを更に添加して混練する工程とに分けられ、さらにワックス／高分子物質組成物を混練する工程はマスターバッチ調製工程と本練り工程とに分けられる。

本発明のワックス組成物の製造工程においては、フィラーの混練工程に先立つワックス／高分子物質組成物を製造する工程において、両者が均一に混合された組成物を得ることが重要である。

以下、ワックス／高分子物質組成物の混練工程を中心に説明する。

- [0056] マスターバッチ調製工程においては、本練り工程に先立ち予めマスターバッチを調製する。マスターバッチは、該マスターバッチの重量基準で5〜45重量%のワックス及び55〜95重量%の高分子物質を含む。ここで留意すべきことは、マスターバッチの組成が、目的物であるワックス組成物の組成に対して逆転していることである。即ち、マスターバッチでは高分子物質が主成分であり且つワックスが副成分であるのに対して、目的物であるワックス組成物ではワックスが主成分であり且つ高分子物質が副成分である。このような組成のマスターバッチを予め調製しておき、該マスターバッチにワックスを添加し混練することで、ワックスと高分子物質とが均一に且つ短時間で混合されることを本発明者らは知見したものである。初めからワックス組成物の組成通りにワックスと高分子物質とを混練しても、つまり主成分たるワックスに副成分である高分子物質を混練しても、混練物中に高分子物質の小粒が残存してしまい両者を均一に混合させることができない。

- [0057] 逆に、5〜45重量%のワックスと55〜95重量%の高分子物質とを混練すると、つまり主成分たる高分子物質に副成分たるワックスを混練すると、両者は容易に混合し、両者が均一に混合されたマスターバッチが得られることを本発明者らは知見した。そして、このようにして得られたマスターバッチにワックスを添加して、高分子物質の濃

度を希釈することで、ワックスと高分子物質とが均一に混合して、目的物であるワックス組成物が得られる。

- [0058] マスターバッチの調製においては、各種の混練機、例えばバッチ式の加圧ニーダー、オープンニーダー、二軸混練機、ロール混練機等を用いることができる。これらの混練機においては、混練時の温度制御の観点から、混合槽や、ローター及びスクリュウなどの可動部を冷却できる仕様となっていることが好ましい。
- [0059] バッチ式の混練機を用いてワックスと高分子物質とを混練する場合には、該混練機に投入するワックス及び高分子物質の総容量が、該混練機の容量の60〜100%、特に75〜85%となるように、ワックス及び高分子物質を該混練機に投入することが、十分な剪断力下に両者が混合されるようになる点から好ましい。混合槽の容量は、使用するバッチ式の混練機のタイプに応じて様々であり特に制限はない。目的物であるワックス組成物の生産量に応じて適切な容量を選択すればよい。
- [0060] マスターバッチの調製においては、ワックスの融解完了温度未満の温度で該ワックスと高分子物質とを混練することが好ましい。ワックスの融解完了温度未満の温度であれば未熔融状態のワックスの結晶が残っていることから、ワックスを見かけ上高粘度の流動体として扱うことができるので、一般的に行われているプラスチック材料のコンパウンドと同様の方法により、ワックスと高分子物質とを混練させることができる。また、ワックスの融解に起因するワックスの急激な粘度低下がなく、高分子物質に十分な剪断力が加わり十分な混練がなされる。
- [0061] マスターバッチの調製においては、ワックス及び高分子物質を混練機に投入する手順に特に制限はない。例えば、ワックスの全量と高分子物質の全量を何れも一括して混練機に投入し混練する方法を採用することができる。しかし、この方法よりも、全量の高分子物質を混練機に一括投入し、次いでワックスを混練機に分割投入する方法を採用する方が、両者を一層均一に混合させ得ることが判明した。
- [0062] ワックスを分割投入する場合には、一回当たりのワックスの投入量が、先に混練機に投入してある非晶性高分子の全量に対して1〜15重量%、特に2〜6重量%となるようにすることが好ましい。つまり一回当たりのワックス投入量を比較的少量とすることが好ましい。このような分割投入をすることで、ワックスと高分子物質とを一層均一に

混合させることができる。

[0063] またワックスを分割投入する場合には、分割投入の初期においては、投入量を相対的に少量とし、後期においては相対的に多量とすることが好ましい。特に、ワックスの投入回数に連れてその投入量が漸次多くなるようにすることが好ましい。このような分割投入をすることで、混練時間を短縮化できる。混練時間の短縮は、製造コストの低減のみならず、剪断力等に起因する高分子物質の分子量低下を防止する点から特に効果的である。

[0064] マスターバッチの混練をバッチ式の加圧ニーダーで行う場合は、ワックスの分割投入の各回においては、先ず加圧しない条件下に混練を所定時間行い、次いで加圧蓋等を用いて加圧した条件下に混練を所定時間行うことが好ましい。これによってワックスと高分子物質とを一層均一に混合させることができる。この場合、加圧しない条件下に混練を行う時間よりも、加圧した条件下に混練を行う時間を長くすることが、更に一層の混合均一の観点から好ましい。具体的には、加圧しない条件下に混練を行う時間を0.5～5分間、特に0.5～2分間とすることが好ましい。一方、加圧した条件下に混練を行う時間は0.5～10分間、特に1～3分間とすることが好ましい。

連続式の二軸混練機で混練を行う場合は、前記方法の加圧しない条件下の混練は必ずしも必要ではない。

[0065] 以上の操作によってマスターバッチが得られる。次に得られたマスターバッチとワックスとを混練する本練り工程を行う。この場合、マスターバッチを混練機から一旦取り出し、別の混練機を用いて本練り工程を行うことができる。その場合の混練機としては、マスターバッチ調製工程において用い得るとして先に列挙したものと同様の混練機を用いることができる。或いは、マスターバッチ調製工程で用いた混練機を引き続き用いて本練り工程を行ってもよい。マスターバッチ調製工程で用いた混練機を引き続き用いる場合であっても、マスターバッチを混練機から一旦取り出し、その一部を用いることが好ましい。この理由は次の通りである。先に述べた通り、マスターバッチ調製工程において、十分な剪断力下にワックスと高分子物質とを混合させるには、混練機に投入する両者の総容量を混練機の混合槽の容量の60～100%とすることが好ましい。従って、マスターバッチが出来上がった時点においては、混練機の混合槽

はマスターバッチでほぼ満たされている。それ故、マスターバッチを取り出さずに更にワックスを添加する余裕がないこともあるからである。

- [0066] マスターバッチ調製工程と同様に本練り工程においても、バッチ式の混練機に投入するワックス及びマスターバッチの総容量が、該混練機の容量の60〜100%、特に80〜90%となるように、ワックス及びマスターバッチを混練機に投入することが、十分な剪断力下に両者が混合されるようになる点から好ましい。
- [0067] 混練時の温度条件もマスターバッチ調製工程の場合と同様とすることができる。つまりワックスの融解完了温度未満の温度で混練することが好ましく、またワックスのガラス転移温度以上で混練することも好ましい。更に高分子物質の T_m 以上もしくはガラス転移温度以上で混合することも好ましい。
- [0068] 本練り工程においては、ワックス及びマスターバッチを混練機に投入する手順に特に制限はない。例えば、ワックスの全量とマスターバッチの全量を何れも一括して混練機に投入し混練する方法を採用することができる。また、全量のマスターバッチを混練機に一括投入し、次いでワックスを混練機に分割投入する方法を採用することもできる。後者の方法の方が、ワックスとマスターバッチとを一層均一に混合させることができる。この事情はマスターバッチ調製工程の場合と同様である。
- [0069] ワックスを分割投入する場合には、一回当たりのワックス投入量を比較的少量とすることが好ましい。具体的には、一回当たりのワックスの投入量が、先に混練機に投入してあるマスターバッチの全量に対して5〜50重量%、特に6〜30重量%となるようにすることが好ましい。このような分割投入をすることで、ワックスとマスターバッチとを一層均一に混合させることができる。
- [0070] またワックスを分割投入する場合には、分割投入の初期においては、投入量を相対的に少量とし、後期においては相対的に多量とすることが好ましい。特に、ワックスの投入回数に連れてその投入量が漸次多くなるようにすることが好ましい。このような分割投入をすることで、マスターバッチ調製工程の場合と同様に混練時間を短縮化できる。
- [0071] 本練り工程をバッチ式の加圧ニーダーで行う場合は、ワックスの分割投入の各回においては、マスターバッチ調製工程の場合と同様に、先ず加圧しない条件下に混練

を所定時間行い、次いで加圧蓋等を用いて加圧した条件下に混練を所定時間行うことが好ましい。これによってワックスとマスターバッチとを一層均一に混合させることができる。この場合、加圧しない条件下に混練を行う時間よりも、加圧した条件下に混練を行う時間を長くすることが、更に一層の混合均一の観点から好ましい。具体的には、加圧しない条件下に混練を行う時間を0.5〜5分間、特に0.5〜2分間とすることが好ましい。一方、加圧した条件下に混練を行う時間は0.5〜10分間、特に1〜5分間とすることが好ましい。連続式の二軸混練機で混練を行う場合は、前記方法の加圧しない条件下の混練は必ずしも必要ではない。

[0072] 以上の本練り工程によって、ワックスと高分子物質とが均一に混合したワックス組成物(ワックス/高分子物質組成物)が得られる。得られたワックス組成物は、混練中に気泡を含むことがある。その気泡を抜くために脱泡を行ってもよい。脱泡には一般的な方法を用いることができる。例えば、減圧下にある恒温槽中でワックス組成物をワックスの融解完了温度以上の温度に保持する方法がある。また混練操作を、減圧手段を持つ混練装置を用いて減圧下でワックスの融解完了温度以上で混合する方法などが用いられる。

[0073] 本練り工程によって得られたワックス組成物(ワックス/高分子物質組成物)に、一括または分割してフィラーを投入し、先ず加圧しない条件下に混練を所定時間行い、次いで加圧蓋等を用いて加圧した条件下に混練を所定時間行うことが好ましい。これによって、本練り工程によって得られたワックス組成物とフィラーとを均一に混練することができる。

[0074] 二軸混練機などを用いて混練を行う場合には、ワックスの融解完了温度未満の温度に制御した混合ゾーンの後ろに、ワックスの融解完了温度以上の温度に加熱した減圧ゾーンを設けて脱泡するという方法も選択できる。複数の二軸押出機、または二軸押出機と単軸押出機を組み合わせ、それぞれで混合と脱泡を行うことも可能である。勿論ワックス組成物の具体的な用途や、本練り工程以降のワックス組成物の加工内容によっては、脱泡の必要がない場合もある。

[0075] また、被混合物として天然ゴムやイソプレンゴムなどを用いる場合は、ワックスと被混合物との分散状態をより均一にするために得られた前記組成物を前記ワックスの融

解完了温度以上に加熱することが好ましい。

[0076] 本発明の製造方法によれば、前記本発明のワックス組成物を短時間で収率よく製造することができ、被混合物をワックス中に均一に分散することができる。特に、ワックスと天然ゴムもしくはイソプレンゴムとの混合を行った場合には、ワックスが未溶融の状態であっても極めて均一な分散が可能となる。本発明の製造方法は、上述の本発明の生分解性ワックス組成物の製造に好適である。

[0077] 本発明の製造方法で得られるワックス組成物は、ワックスを主体とする防湿性組成物や接着用組成物として特に好ましく用いられる。また、製造工程において有機溶剤などを一切用いることなくワックス組成物を得ることができるため、本発明の製造方法で得られるワックス組成物を用いることで食品包装材料を始めとして様々な分野において極めて安全な製品を提供できる。

実施例

[0078] 以下、実施例により本発明を更に具体的に説明する。なお、本発明は本実施例に何等制限されるものではない。

[0079] 〔実施例1-1〕

マイクロクリスタリンワックス(日本精蠟(株)製、品番「Hi-Mic-1070」、融解完了温度86℃、主ピーク温度44℃)を粉砕機で10mm以下に冷凍粉砕した。また、イソプレンゴム(日本ゼオン(株)製、品番Nipol-IR2200)を装置に投入しやすい大きさに切断した。

(株)モリヤマ製の加圧ニーダー(DS. DX75型)を用い、加圧ニーダーの混練容器に前記イソプレンゴム41.5kgを投入した。次いで、前記マイクロクリスタリンワックス12.5kgを、前記イソプレンゴム全量に対して2%～6%の範囲で10分割し、分割投入を行った。ワックス分割投入時には投入毎に加圧なしの混練を約0.5分間行い、その後加圧混練を1.5分間または2分間行った。混練時には、混合容器及びローターに約15℃の冷却水を流し、ヒーターは全てOFFの状態で行った。

得られたマスターバッチ組成物は、気泡を含んだ白色であり、各成分の分散が均一であることが確認できた。得られた組成物を110℃、窒素気流の乾燥機中で熔融状態にし、再度各成分の分散状態を確認したところ、未分散のイソプレンゴムの存在は

確認できなかった。

本練工程では、得られたマスターバッチ組成物26.0kgを、(株)森山製の加圧ニーダーの混練容器に投入し、さらに前記マイクロクリスタリンワックス54kgを、前記イソプレンゴム全量に対して6%～30%の範囲で11分割し、分割投入を行った。ワックスの分割投入時には、投入毎に加圧なしの混練を約0.5分間行い、その後加圧混練を1.5分間または2分間行った。混練時には、混合容器及びローターに約15℃の冷却水を流し、ヒーターは全てOFFの状態で行った。

得られたワックス組成物は、気泡を含んだ白色であり、各成分の分散が均一であることが確認できた。得られた組成物を110℃、窒素気流下、-500mgHgの乾燥機中で脱泡し、熔融状態で再度分散性を確認したところ、透明で均一な組成物であり、未分散のイソプレンゴムの存在は確認できなかった。

上記のワックス組成物50gと、フィラーとして無水シリカ粒子(日本アエロジル(株)製、品番「AEROSIL 200」一次粒子の平均径12 μ m)2.6gとを、東洋精機製作所(株)製のラボプラストミル(30C150型)の混練容器に供給し、回転数30rpm、ヒーターは全てOFFの状態で行い、フィラーを含むワックス組成物を得た。

[0080] 次いで、ポリカプロラクトンとポリエチレンサクシネートとをポリマーブレンドした生分解性樹脂(ダイセル化学工業(株)製PHB05)からなるフィルムの間にワックス組成物の層を挟み、プレス成形機によって成形して3層構造の生分解性フィルムを作製した。得られた生分解性フィルムは全厚350 μ m、ワックス組成物の層の厚みが150 μ m、各生分解性樹脂フィルムの厚みが100 μ mであった。

[0081] 〔実施例2-1〕

(株)森山製作所製の加圧ニーダー(DS0.3-3型)を用い、加圧ニーダーの混練容器にマイクロクリスタリンワックス(日本精蠟(株)製、品番「Hi-Mic-1070」)1800gと、イソプレンゴム(日本ゼオン(株)製、品番Nipol-IR2200)600gを入れ、回転数20rpmで5分間混練を行い、次いで同じワックス600gを追加投入してさらに10分間の混練を行い、フィラーを含まないワックス組成物を得た。混練は、混合容器及びローターに10℃の冷却水を流し、ヒーターは全てOFFの状態で行った。

[0082] 得られたフィラー無添加のワックス組成物50gと、フィラーとしての無水シリカ粒子(

日本アエロジル(株)製、品番「AEROSIL 200」、一時粒子の平均径 $12\mu\text{m}$) 2.6 g(5重量%)とを、東洋精機製作所(株)製ラボプラスミル(30C150型)の混練容器に供給し、回転数30rpm、ヒーターを全てOFFの状態では10分間混練を行い、フィラーを含むワックス組成物を得た。

[0083] 次いで、ポリカプロラクトンとポリエチレンサクシネートとをポリマーブレンドした生分解性樹脂(ダイセル化学工業(株)製PHB05)からなるフィルムの間にワックス組成物の層を挟み、プレス成形機によって成形して3層構造の生分解性フィルムを作製した。得られた生分解性フィルムは全厚 $350\mu\text{m}$ 、ワックス組成物の層の厚みが $150\mu\text{m}$ 、各生分解性樹脂フィルムの厚みが $100\mu\text{m}$ であった。

[0084] [実施例2-2]

実施例2-1において、無水シリカ粒子を10重量%とした以外は、実施例2-1と同様にフィラー添加のワックス組成物および3層フィルムを得た。

[0085] [実施例2-3]

実施例2-1において、無水シリカ粒子を親油性処理無水シリカ(日本アエロジル(株)製、品番「AEROSIL R972」、一次粒子の平均径 $16\mu\text{m}$)に代え、実施例2-1と同様にフィラー添加のワックス組成物および3層フィルムを得た。親油性処理無水シリカの添加量は5重量%である。

[0086] [実施例2-4]

実施例2-2において、フィラーを親油性処理無水シリカの添加量を10重量%とし、実施例2-2と同様にフィラー添加のワックス組成物および3層フィルムを得た。

[0087] [実施例2-5]

実施例2-2において、フィラーを親油性雲母(コープケミカル(株)製、品番「ソシマフMAE」、平均粒径 $6\mu\text{m}$)に代えて、実施例3-2と同様にフィラー添加のワックス組成物および3層フィルムを得た。親油性雲母の添加量は10重量%である。

[0088] [比較例2-1]

実施例2-1-2-5と同等の履歴を受けたフィラー無添加のワックス組成物を得るために、実施例1において、フィラー無添加のワックス組成物のみをラボプラスミルにて再度混練してワックス組成物および3層フィルムを得た。

[0089] [性能評価]

得られたワックス組成物について前述の方法で透湿度及びMFRを測定した。結果を表1に示す。ワックス組成物の透湿度については、3層フィルムの透湿度の測定値と、生分解性樹脂フィルム層(PHB05、100 μ m)の透湿度の測定値132g/ $\text{m}^2 \cdot 24$ hrから求めた。

[0090] [表1]

	ワックス (重量%)	ポリグリ (重量%)	フィラー (重量%)			MFR (g/10min)	3層フィルムの 透湿度 ($\text{g}/\text{m}^2 \cdot 24\text{hr}$)	ワックス組成物の 透湿度 ($\text{g} \cdot \text{mm}/\text{m}^2 \cdot 24\text{hr}$)
			アエロジル 200	アエロジル R972	雲母			
実施例 1-1	76	19	5	—	—	196	7.0	1.3
実施例 2-1	76	19	5	—	—	210	6.7	1.2
実施例 2-2	72	18	10	—	—	32	7.6	1.3
実施例 2-3	77.6	19.4	—	5	—	250	7.8	1.3
実施例 2-4	72	18	—	10	—	61	8.8	1.5
実施例 2-5	72	18	—	—	10	380	8.3	1.4
比較例 2-1	80	20	—	—	—	1800	4.5	0.7

[0091] 表1から明らかなように、各実施例(実施例1-1、2-1〜2-5)のワックス組成物はMFRが高く、また透湿度が低いワックス組成物および生分解性フィルムを得ることができた。なお表には示していないが、各実施例のワックス組成物及び生分解性フィルムは何れも生分解性を有していることを確認した。

[0092] 以下に、ワックス／高分子物質組成物の混練条件を種々変更する試験を行った。フィラーの混練工程に先立つ、ワックス／高分子物質組成物の混練工程において均一な混合状態を達成することが、本発明のワックス組成物の製造において特に重要である。

下記実施例3-1及び比較例3-1、3-2のようにしてワックス組成物を作製した。実施例3-1及び比較例3-1、比較例3-2の混練装置には75L加圧ニーダーを使用した。そして、該組成物について、下記のように分散の均一性を評価した。分散性の評価は、該組成物をワックスの融点以上に加熱して脱泡した後、熔融状態のまま1mm程度の厚みに伸ばして目視により粒状の被混合物の存在の有無を確認する方法で

行った。また、混練物の物性を確認するためメルトフローインディクサー(温度125℃、荷重1.25kg)でMFR(メルトフローレート)を測定した。なお、粒状物の視認は未分散状態であると判断した。

[0093] [実施例3-1]

マイクロクリスタリンワックス(日本精蠟(株)製、品番「Hi-Mic-1070」、融解完了温度86℃、主ピーク温度44℃)を粉砕機で10mm以下に冷凍粉砕した。また、イソプレンゴム(日本ゼオン(株)製、品番Nipol-IR2200)は装置に投入しやすい大きさに切断した。

[0094] マスターバッチ調整工程において加圧ニーダーへの投入量は、混練容器容量の80%、比重0.9、イソプレンゴム100重量部、マイクロクリスタリンワックス30重量部から算出した。

投入量=75[加圧ニーダー容積:L]×0.8[投入容量]×0.9[比重]

[0095] (株)モリヤマ製の加圧ニーダー(DS. DX75型)を用い、加圧ニーダーの混練容器にイソプレンゴム(日本ゼオン(株)製、品番Nipol-IR2200)41.5kg(100重量部)を投入し、回転数30rpmで4分間混練を行い、次いでマイクロクリスタリンワックス(日本精蠟(株)製、品番「Hi-Mic-1070」)12.5kg(30重量部)をイソプレンゴム全量に対して2%から6%の範囲で10分割し、分割投入を行った。ワックス分割投入時には投入毎に加圧なしの混練を約0.5分間行い、その後加圧混練を1.5分間または2分間行った。混練は、混合容器及びローターに約15℃の冷却水を流し、ヒーターは全てOFFの状態で行った。混練終了後の組成物の温度を接触式温度計で直接測定したところ、60〜70℃であり、その時の $\Delta H' / \Delta H$ は0.70〜0.85であった。

[0096] 得られたマスターバッチ組成物は、気泡を含んだ白色のもので、各成分の分散が均一であることが確認できた。得られた組成物を110℃、窒素気流の乾燥機中で熔融状態にし、再度分散状態を確認したところ、未分散の天然ゴムの存在は確認できなかった。

[0097] 本練り工程での混練のため、得られたマスターバッチ組成物を混練容器から全量取り出し計量を行った。本練り工程において加圧ニーダーへの投入量は、混練容器

容量の90%、比重1.0、イソプレンゴム130重量部、マイクロクリスタリンワックス205重量部から算出した。

投入量=75[加圧ニーダー容積:L]×0.9[投入容量]×1.0[比重]

- [0098] (株)モリヤマ製の加圧ニーダー(DS. DX75型)を用い、加圧ニーダーの混練容器に作成したマスターバッチ組成物26.0kg(130重量部)を投入し、回転数30rpmで5分間混練を行い、次いでマイクロクリスタリンワックス(日本精蠟(株)製、品番「Hi-Mic-1070」)46.5kg(205重量部)をイソプレンゴム全量に対して6%~30%の範囲で11分割し、分割投入を行った。ワックス分割投入時には投入毎に加圧なしの混練を約0.5分間行い、その後加圧混練を1分間または2分間または5分間行った。混練は、混合容器及びローターに約15℃の冷却水を流し、ヒーターは全てOFFの状態で行った。混練終了後の組成物の温度を接触式温度計で直接測定したところ、60~70℃であり、その時の $\Delta H' / \Delta H$ は0.70~0.85であった。

- [0099] 得られたワックス組成物は、気泡を含んだ白色のもので、各成分の分散が均一であることが確認できた。得られた組成物を110℃、窒素気流、-500mmHgの乾燥機中で脱泡し、熔融状態で再度分散状態を確認したところ、透明で均一な組成物であり、未分散の天然ゴムの存在は確認できなかった。また、混練物の物性を確認するためメルトフローインデクサー(温度125℃、荷重1.25kg)でMFRを測定した結果、MFR値が約37[g/10分]であった。

- [0100] [比較例3-1]

(株)モリヤマ製の加圧ニーダー(DS. DX75型)を用い、本来得ようとしているワックス主体とした混練物の組成比であるイソプレンゴム30%、マイクロクリスタリンワックス70%組成物の混練を行った。加圧ニーダーへの投入量は、混練容器容量の90%、比重1.0、イソプレンゴム100重量部、マイクロクリスタリンワックス235重量部から算出した。

- [0101] 加圧ニーダーの混練容器にイソプレンゴム(日本ゼオン(株)製、品番Nipol-IR2200)20.0kg(100重量部)を投入し、回転数30rpmで5分間混練を行い、次いでマイクロクリスタリンワックス(日本精蠟(株)製、品番「Hi-Mic-1070」)47.5kg(235重量部)をイソプレンゴム全量に対して30%から60%の範囲で6分割し、分割投入を

行った。ワックス分割投入時には投入毎に加圧なしの混練を約0.5分間または2分間行い、その後加圧混練を1分間または2分間または5分間行った。混練は、混合容器及びローターに約15℃の冷却水を流し、ヒーターは全てOFFの状態で行った。混練終了後の組成物の温度を接触式温度計で直接測定したところ、40～50℃であり、その時の $\Delta H' / \Delta H$ は0.26～0.50であった。

[0102] 得られた組成物は、気泡を含んだ半透明のもので、目視により未混練物のイソプレンゴムが確認できた。得られた組成物を110℃、窒素気流、-500mmHgの乾燥機中で脱泡し、熔融状態で再度分散状態を確認したところ、目視により未分散のイソプレンゴムの存在が確認された。なお、イソプレンゴムの未分散物が多量なので、MFRは測定しなかった。

[0103] [比較例3-2]

(株)モリヤマ製の加圧ニーダー(DS. DX75型)を用い、本来得ようとしているワックス主体とした混練物の組成比であるイソプレンゴム30%、マイクロクリスタリンワックス70%組成物の混練を行った。加圧ニーダーへの投入量は、混練容器容量の90%、比重1.0、イソプレンゴム100重量部、マイクロクリスタリンワックス235重量部から算出した。

[0104] 加圧ニーダーの混練容器にイソプレンゴム(日本ゼオン(株)製、品番Nipol-IR2200)20.0kg(100重量部)を投入し、回転数30rpmで5分間混練を行い、次いでマイクロクリスタリンワックス(日本精蠟(株)製、品番「Hi-Mic-1070」)47.5kg(235重量部)をイソプレンゴム全量に対して4%から30%の範囲で10分割し、分割投入を行った。ワックス分割投入時には投入毎に加圧なしの混練を約0.5分間または2分間行い、その後加圧混練を1分間または2分間および5分間行った。混練は、混合容器及びローターに約15℃の冷却水を流し、ヒーターは全てOFFの状態で行った。混練終了後の組成物の温度を接触式温度計で直接測定したところ、40～50℃であり、その時の $\Delta H' / \Delta H$ は0.26～0.50であった。

[0105] 得られた組成物は、気泡を含んだ半透明のもので、目視により未混練物のイソプレンゴムが確認できた。得られた組成物を110℃、窒素気流、-500mmHgの乾燥機中で脱泡し、熔融状態で再度分散状態を確認したところ、目視により未分散のイソプ

レンゴムの存在が確認された。なお、混練物の物性を確認するため、混練物からインプレゴムの未分散物を取り除きメルトフローインディクサー(温度125℃、荷重1.25kg)でMFRを測定した。結果、MFR値が約104[g/10分]で、実施例3-1で実施したマスターバッチ方法と比較してMFR値が高くなっていることが確認された。

産業上の利用可能性

[0106] 本発明の製造方法によれば、各成分の分散が均一なワックス組成物を、短時間且つ低コストで収率よく製造できる。

[0107] また、本発明のワックス組成物は、防湿性に優れ、熔融成形が容易である。該ワックス組成物を用いることにより、防湿性に優れた生分解性フィルムを得ることができる。

請求の範囲

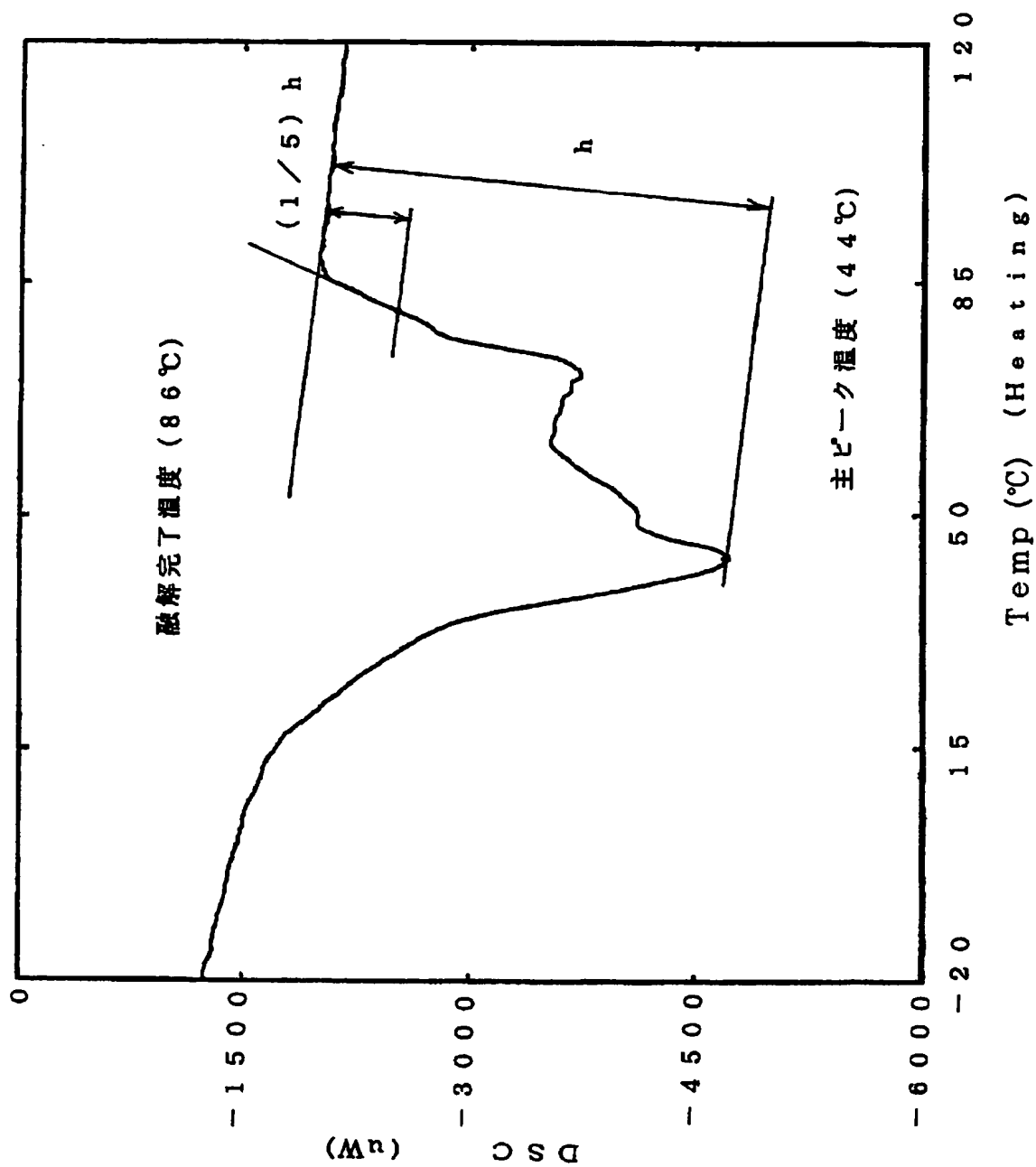
- [1] ワックスを主体とし、生分解性の高分子物質およびフィラーを含有し、40℃、90％RHにおける透湿度が $3\text{g}\cdot\text{mm}/\text{m}^2\cdot 24\text{hr}$ 以下である生分解性ワックス組成物。
- [2] 前記ワックスの含有量が65～95重量％である請求の範囲第1項記載の生分解性ワックス組成物。
- [3] 前記生分解性の高分子物質の重量平均分子量が200,000以上である請求の範囲第1項又は第2項記載の生分解性ワックス組成物。
- [4] 前記高分子物質がポリイソプレン又は天然ゴムであり、該高分子物質を5～35重量％含有する請求の範囲第1項記載の生分解性ワックス組成物。
- [5] 請求の範囲第1項記載の生分解性ワックス組成物からなる防湿層を有し、該防湿層の少なくとも一面に生分解性の基材層が積層されてなる生分解性積層体。
- [6] ワックスを主体とし、高分子物質およびフィラーを含有するワックス組成物の製造方法であって、予めワックス及び高分子物質を含み該ワックスを主体とするワックス／高分子物質組成物を混練する工程と、このワックス／高分子物質組成物にフィラーを更に添加して混練する工程とを具備するワックス組成物の製造方法。
- [7] 上記ワックス／高分子物質組成物が50～95重量％のワックス及び5～50重量％の高分子物質を含有し、上記ワックス／高分子物質組成物の製造工程が予め5～45重量％のワックス及び55～95重量％の高分子物質を含むマスターバッチを調製するマスターバッチ調製工程と、このマスターバッチにワックスを更に添加し混練する本練り工程とを具備する請求の範囲第6項記載のワックス組成物の製造方法。
- [8] マスターバッチ調製工程において、ワックスの融解完了温度未満の温度で、該ワックスと高分子物質とを混練する請求の範囲第7項記載のワックス組成物の製造方法。
- [9] マスターバッチ調製工程において、全量の高分子物質を混練機に一括投入し、次いでワックスを混練機に分割投入する請求の範囲第7項又は第8項記載のワックス組成物の製造方法。
- [10] 一回当たりのワックスの投入量が、高分子物質全量に対して1～15重量％となるようにワックスを分割投入する請求の範囲第9項記載のワックス組成物の製造方法。
- [11] ワックスの投入回数に連れてその投入量が漸次多くなるようにワックスを分割投入

する請求の範囲第9項記載のワックス組成物の製造方法。

- [12] マスターバッチ調製工程において、ワックスと高分子物質とをバッチ式混練機によって混練し、
バッチ式混練機に投入するワックス及び高分子物質の総容量が、該混練機の容量の60〜100%となるように、ワックス及び高分子物質を投入する請求の範囲第7項記載のワックス組成物の製造方法。
- [13] 本練り工程において、ワックスの融解完了温度未満で、該ワックスとマスターバッチとを混練する請求の範囲第7項記載のワックス組成物の製造方法。
- [14] 本練り工程において、全量のマスターバッチを混練機に一括投入し、次いでワックスを混練機に分割投入する請求の範囲第7項記載のワックス組成物の製造方法。
- [15] 一回当たりのワックスの投入量が、マスターバッチ全量に対して5〜30重量%となるようにワックスを分割投入する請求の範囲第14項記載のワックス組成物の製造方法。
- [16] ワックスの投入回数に連れてその投入量が漸次多くなるようにワックスを分割投入する請求の範囲第14項記載のワックス組成物の製造方法。
- [17] 本練り工程において、ワックスとマスターバッチとをバッチ式混練機によって混練し、
バッチ式混練機に投入するワックス及びマスターバッチの総容量が、該混練機の容量の60%以上となるように、ワックス及びマスターバッチを投入する請求の範囲第7項記載のワックス組成物の製造方法。

[図1]

Fig.1



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/014658

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl⁷ C08L91/06, C08J3/22

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl⁷ C08L91/00-91/08, C08J3/20-3/22

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 50-7802 A (Nippon Oil Co., Ltd.), 27 January, 1975 (27.01.75), Claims; examples (Family: none)	1-7, 9-12, 14-17 8, 13
P, X	JP 2004-131575 A (Kao Corp.), 30 April, 2004 (30.04.04), Claims; examples (Family: none)	1-6
P, X	JP 2004-162037 A (Kao Corp.), 10 June, 2004 (10.06.04), Claims; examples (Family: none)	1-4, 6

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search
28 December, 2004 (28.12.04)

Date of mailing of the international search report
18 January, 2005 (18.01.05)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/014658

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X	JP 2003-311868 A (Kao Corp.), 06 November, 2003 (06.11.03), Claims; examples & WO 03/70459 A1	1-6
P, X	JP 2004-142426 A (Dainichiseika Color & Chemicals Mfg. Co., Ltd.), 20 May, 2004 (20.05.04), Claims; examples (Family: none)	1-6
A	JP 2003-261129 A (Toppan Printing Co., Ltd.), 16 September, 2003 (16.09.03), Claims; examples & WO 02/70820 A1 & EP 1418272 A & US 2004-105941 A	1-17
A	JP 8-302166 A (Toppan Printing Co., Ltd.), 19 November, 1996 (19.11.96), Claims; examples (Family: none)	1-17
P, A	JP 2003-305816 A (Toyobo Co., Ltd.), 28 October, 2003 (28.10.03), Claims; examples (Family: none)	1-17

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/014658

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

The subject matters of claims 1-4 and claim 5 pertain to a biodegradable wax composition and a biodegradable layered product having a moistureproof layer made of the biodegradable wax composition, while the subject matters of claims 6-17 pertain to a process for producing a wax composition. The subject matters of claims 6-17 are not considered to be a process for producing the biodegradable wax composition of claims 1-4. Consequently, there is no matter common to all the claims 1-17. Any other common matter is not considered to be a special technical feature in the meaning of the second sentence of Rule 13.2 of the Regulations under the PCT. No technical relationship in (continued to extra sheet.)

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
- ☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/014658

Continuation of Box No.III of continuation of first sheet (2)

the meaning of Rule 13 of the Regulations under the PCT can hence be found among those different inventions.

Therefore, it is obvious that claims 1-17 do not comply with the requirement of unity of invention.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))		
Int. Cl ⁷ : C08L91/06, C08J3/22		
B. 調査を行った分野		
調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))		
Int. Cl ⁷ : C08L91/00-91/08, C08J3/20-3/22		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの		
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X A	J P 50-7802 A (日本石油株式会社) 1975.01.27, 特許請求の範囲及び実施例 (ファミリーなし)	1-7, 9-12, 14-17 8, 13
P, X	J P 2004-131575 A (花王株式会社) 2004.04.30, 特許請求の範囲及び実施例 (ファミリーなし)	1-6
P, X	J P 2004-162037 A (花王株式会社) 2004.06.10, 特許請求の範囲及び実施例	1-4, 6
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 28.12.2004		国際調査報告の発送日 18.1.2005
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		特許庁審査官 (権限のある職員) 小野 寺 務 電話番号 03-3581-1101 内線 3455

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
	(ファミリーなし)	
P, X	J P 2003-311868 A (花王株式会社) 2003. 11. 06, 特許請求の範囲及び実施例 &WO 03/70459 A1	1-6
P, X	J P 2004-142426 A (大日精化工業株式会社) 2004. 05. 20, 特許請求の範囲及び実施例 (ファミリーなし)	1-6
A	J P 2003-261129 A (凸版印刷株式会社) 2003. 09. 16, 特許請求の範囲及び実施例 &WO 02/70820 A1 &EP 1418272 A &US 2004-105941 A	1-17
A	J P 8-302166 A (凸版印刷株式会社) 1996. 11. 19, 特許請求の範囲及び実施例 (ファミリーなし)	1-17
P, A	J P 2003-305816 A (東洋紡績株式会社) 2003. 10. 28, 特許請求の範囲及び実施例 (ファミリーなし)	1-17

第Ⅱ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項 (PCT 17条(2)(a)) の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第Ⅲ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

請求の範囲1-4及び請求の範囲5に記載された発明は、生分解性ワックス組成物及び該生分解性ワックス組成物からなる防湿層を有する生分解性積層体に係るものであるのに対して、請求の範囲6-17に記載された発明は、ワックス組成物の製造方法に係るものである。ここで、請求の範囲6-17に記載された発明は、請求の範囲1-4に記載された生分解性ワックス組成物の製造方法に該当するとは認められないから、請求の範囲1-17に係る発明全てに共通の事項はない。PCT規則13.2の第2文の意味において特別な技術的特徴と考えられる他の共通の事項は存在しないので、それらの相違する発明の間にPCT規則13の意味における技術的な関連を見いだすことはできない。よって、請求の範囲1-17に係る発明は発明の単一性の要件を満たしていないことが明らかである。

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☒ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。